

汚染水処理で発生する使用済みゼオライトを含む ガラス固化体からの構成元素の浸出挙動

Leaching behavior of constituent elements from vitrified waste containing spent zeolite used in the contaminated water treatment

*渡辺 藍己¹, 薄井 茜¹, 新井 剛²

¹ 芝浦工業大学大学院, ² 芝浦工業大学

セシウム除去装置に用いられるゼオライトの処理方法としてホウ酸塩ガラスによるガラス固化に着目した。本研究では、ゼオライトとホウ酸塩ガラスを一体化した固化体試料からの構成元素の浸出挙動を検討した。

キーワード: 東京電力福島第一原子力発電所, ホウ酸塩ガラス, ゼオライト, ガラス固化

1. 緒言 東京電力福島第一原子力発電所から発生する放射性物質を含む水(汚染水)は、セシウム吸着装置等により浄化処理され、循環注水冷却に用いられている。セシウム吸着装置にはゼオライト等の無機吸着材が用いられているが、放射性核種を吸着した無機吸着材の処理方法は未だ決定していない。そこで筆者らは、使用済みゼオライトの処理方法としてガラス固化法の検討を行っている。また、汚染水の処理方法も未定であり、現在も多量の汚染水が貯留されている。汚染水には炉心冷却の緊急措置として大量に注入されたホウ酸が多く含まれていることから、汚染水中のホウ酸をガラスの骨格構造とすることで、廃棄体の大幅な減容が期待される。既往の研究成果より、 $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$ ガラスに ZnO を添加することで耐水性の向上が確認されていることから、本研究では、 $\text{Na}_2\text{O}-\text{ZnO}-\text{B}_2\text{O}_3$ ガラスと模擬使用済みゼオライトを一体化した固化体試料について検討した^[1]。

2. 実験方法 本実験では、X型ゼオライト(f-9)にCsを飽和吸着させ、十分に乾燥させたものを模擬使用済みゼオライトとして調製した。また、ガラス原料には、mol比で $\text{B}:\text{Na}:\text{Zn}=1:0.5:0.6$ となるように秤量した四ホウ酸ナトリウム無水物と酸化亜鉛を用いた。ガラス原料と10 wt%の模擬使用済みゼオライトを乳鉢で混合し、アルミナ増培に入れた。これらをマッフル炉により1100℃で1時間保持し、室温で急冷することで固化体試料を得た。得られた固化体試料を75-150μmに整粒し浸漬試験を行った。試験溶液は蒸留水(pH=5.95)を使用し、75-150μmに整粒した粉末試料1.0gと試験溶液10cm³をフッ素樹脂製容器に入れ密封し、90℃に調整した恒温槽内に最大14日間静置した。所定期間ごとに恒温槽から取り出し、試験容器を密封したまま自然放冷した。放冷後、試験容器の重量を測定し、浸出液の漏れや蒸発による重量減少がないことを確認した後に浸出液のpHを測定した。また、浸出液を孔径0.2μmのフィルターでろ過し、ろ液の元素濃度を測定することで規格化浸出量を算出した。浸漬後の固化体試料はデシケーター内で乾燥後、X線回折装置(XRD)により分析した。

3. 結果・考察 図1に得られた固化体試料の規格化浸出量及びpHの経時変化を示す。図1より、何れの元素においても規格化浸出量は、時間経過に伴い増加することが確認された。また、規格化浸出量の多い元素はNa, B, Cs, Znの順であり、Znの規格化浸出量は他の元素と比較して極めて低かった。最も低い値を示したZnは、固化体試料表面で水溶液中のH⁺と反応し、 $\text{Zn}(\text{OH})_2$ として安定な形で存在するため、溶出しにくいと推察される。また、浸漬液のpHは浸漬時間が1日でpH=9.8程度まで上昇し、その後はほぼ一定の値を示した。pHの上昇は、Naの溶出に起因するものと考えられ、その後一定値を示したのは固化体試料中から溶出したホウ酸による緩衝作用によるものと推察される。次いで、図2に浸漬前後の固化体試料のXRD分析結果を示す。図2より、浸漬前及び浸漬時間が1日の固化体試料では非晶質特有のブロードな波形が確認されたことからガラス化していると考えられる。一方、浸漬時間が3日以上以上の固化体試料では、何れもZnOの結晶ピークが確認された。このことから、ZnOは浸漬時間が1~3日間で形成されると考えられる。以上の結果から、固化体試料は、化学的耐久性の向上を目的とした組成の検討が必要であると考えられる。本会では、 $\text{Na}_2\text{O}-\text{ZnO}-\text{B}_2\text{O}_3$ ガラスと模擬使用済みゼオライトを一体化した固化体試料からの構成元素の浸出挙動についても検討したので報告する。本研究は、文部科学省廃止措置等基盤研究・人材育成プログラム委託費により実施された「廃止措置工学高度人材育成と基盤研究の深化」の成果の一部です。

参考文献

[1] 鈴木孝哉ら：日本原子力学会 2015年秋の大会 予稿集 E-29, (2015)

*Aiki Watanabe¹, Akane Usui¹, Tsuyoshi arai²

¹ Shibaura Institute of Technology Graduate school, ² Shibaura Institute of Technology

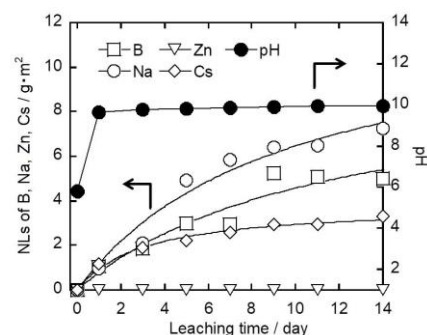


図1 固化体試料の規格化浸出量及びpHの経時変化

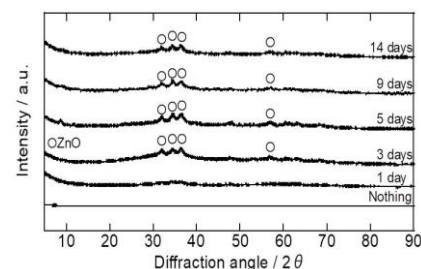


図2 固化体試料のXRD分析結果